

平成 21 年 6 月 1 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19560662

研究課題名 (和文) 材料の構造階層性と照射のマルチスケール性を踏まえた
金属内ヘリウム損傷のモデル化

研究課題名 (英文) Multiscale Modeling of the Effect of Helium on Radiation
Damage Process in Metals during Irradiation

研究代表者

森下和功 (MORISHITA KAZUNORI)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授

研究者番号：80282581

研究成果の概要：核融合炉や原子炉で使用される材料の照射下挙動に関して、材料の階層構造性や照射プロセスのマルチスケール性を踏まえつつモデル化を行った。そして、照射による材料マイクロ組織変化の予測に必要な方法論を構築した。特に、材料内に形成する欠陥集合体の核生成・成長メカニズムについて、材料学的基盤のしっかりとしたモデルを作り上げた。炉の安全の基本は材料の健全性にあることから、これらの知見は、安全・安心な炉システムの開発に重要である。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：核融合材料・原子炉材料

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：非平衡材料，核生成・成長理論，照射損傷，計算材料学，
材料照射相関，マルチスケールモデリング

1. 研究開始当初の背景

材料照射損傷は、時間的にも空間的にもマルチスケールな現象である。これをモデル化し、照射下材料の寿命予測などを行うには、さまざまなスケールで現象を評価し、多角的に分析を加える必要がある。研究開始当初は、このような多角的アプローチがさほど一般的でなく、多くのモデル化研究において、曖昧な仮定を導入せざるを得ない状況にあった。それはすなわち、予測精度に問題があることを意味する。

2. 研究の目的

照射下材料のマイクロ組織変化に重要な照射欠陥集合体の核生成・成長に関するモデルを構築し、照射下材料挙動予測を行うための知見を得ること。また、対応するシミュレーションコードを作ること。

3. 研究の方法

各種計算機シミュレーション手法（分子動力学法，キネティックモンテカルロ法，反応速度論解析法）を用いつつ，また，それらの長所・短所を踏まえながら相補的に活用・融合することにより，照射材料に見られるナノスケールの欠陥集合体の核生成・成長プロセス

スについて、曖昧さの少ないモデルを構築すること。特に、反応速度論解析の簡便性とモンテカルロ法によって導入されるゆらぎの効果を十分に活用した方法であることを強調しておく。

4. 研究成果

原子力発電設備の健全性は、原子力の『安全論理』と『保全論理』の2つにより確保される。前者が、深層防護や多重構造の考えを原則として、様々な事故を想定しながら、安全な原子炉を設計・建設するためのものであるのに対し、後者は、運転開始後の機器・系統の機能維持など、原子炉の保全にかかわるものである。機器・系統の機能維持の基本は、それを構成する材料健全性の確保にほかならない。

原子炉で使われる材料が、他の工業材料と比べて大きく異なるのは、放射線照射という特殊な環境で使用される点である。照射を受けた材料中では、原子サイズの非平衡な格子欠陥が局所的に高密度に形成し、それらが及ぼす効果によって、材料機能が喪失し、特性が劣化する。このような特殊な環境で使われる材料の健全性を確保するには、材料が本来もっている構造階層性と、その中で起こる材料照射損傷プロセスのマルチスケール性（時間的・空間的尺度の階層性）を考慮しなければならない。

本研究では、まず、【項目 I】非平衡材料学において重要な照射欠陥集合体（純鉄中のヘリウムバブルと SiC 中のポイド）の核生成・成長モデルを、マルチスケールモデリング的な手法を駆使することにより開発した。また同時に、【項目 II】材料照射損傷プロセスの時間的および空間的構造に関する以下の種々の関係性について十分な検討を行い、モデリング指針を獲得した。

- ・材料の空間的階層性、多要素性
- ・照射プロセスの時間的および空間的マルチスケール性
- ・照射劣化と照射場の因果性（照射相関）
- ・マイクロマクロの関連性をつなぐ微視化と粗視化
- ・自然環境中の物質循環現象との類似性

なお、【項目 I】については、本研究をさらに展開させるべく系統的な研究を進めるため、2009 年度からの新たな科学研究費基盤研究(C)において、研究を開始している。また、【項目 II】については、材料照射損傷プロセスの時間的・空間的構造化の一般論を十分に進展させることができたが、これについては、以下の「5. 主な発表論文等」の〔雑誌論文〕[6][7][8]に示したように、解説記事をすでに出版しているので、そちらを参照されたい。

ここでは、【項目 I】に関連して、新たに取得できた材料学的知見を以下にまとめておく。

(1) 金属中のヘリウムバブルの核生成・成長のモデル化

ヘリウムバブルを半径 R の球とすると、バブルに流入する欠陥 k の正味のフラックスは、 $I_k = I_k^{\text{IN}} - I_k^{\text{OUT}} = 4\pi R Z_k D_k [C_k(\infty) - C_k(R)] / \Omega$ で与えられる。ここで、 Z_k は欠陥捕獲効率、 Ω は原子体積、 D_k は拡散係数、 $C_k(x)$ はバブル中心からの距離 x における欠陥濃度である。欠陥 k としては、格子間 He、原子空孔、自己格子間原子 (SIA) を採用した。この式から、 I_k の正負は、 I_k^{IN} と I_k^{OUT} の大小（もしくは、 $C_k(\infty)$ と $C_k(R)$ の大小）で決まることになる。

まず簡単のため、系内に原子空孔のみが存在する場合を考える。通常、微小サイズのポイドに対しては、原子空孔の I_V^{IN} は I_V^{OUT} より小さく、したがって、 I_V は負になる。そのため、(I_V^{IN} と I_V^{OUT} を別々ではなく) I_V を扱う従来の反応速度論解析では、微小サイズのポイドが成長しないことになってしまう。

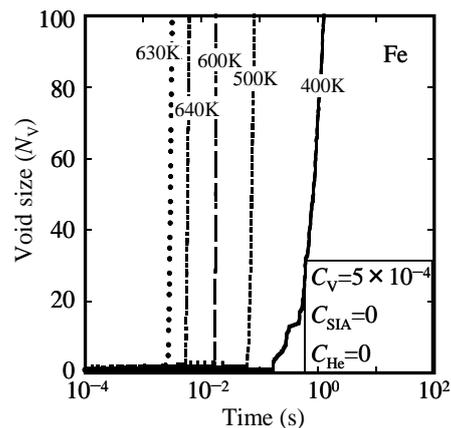


図1 Fe中のポイド成長

そのためこれまでの研究では適当な核を仮定する必要があった。そこで本研究では、 I_V^{IN} と I_V^{OUT} を別々に評価し、ポイドに対する原子空孔の流入と流出の確率がそれぞれ I_V^{IN} と I_V^{OUT} に比例すると考えた。実際に空孔が流入するのか流出するのかは、モンテカルロ法を使って（サイコロを振って）決定した。このような手法を用いることにより、確率論的にポイドの核生成を扱うことが可能になる。実際、 $I_V = I_V^{\text{IN}} - I_V^{\text{OUT}} < 0$ の条件ではなかなかポイドは核生成しないが、ある程度の潜伏期間が過ぎると、原子空孔の流入フラックスの確率論的ゆらぎの効果により、ポイドが核生成するようになる。同様に、原子空孔だけでなく、自己格子間原子 SIA や格子間 He が系内に存在する場合も考え、ヘリウムバブルの核生成を調べた。

図1は、原子空孔のみが存在する系のポイ

ド核生成のシミュレーション結果である。潜伏期間は、温度とともに減少するが、これは、高温になるにつれ原子空孔の移動度が上昇するからである。しかしながら、630K以上になると、逆に、潜伏期間が増大し、650Kにおいては、シミュレーション期間中にボイドが核生成することはなかった。これは、650K付近に回復のステージV温度が存在することに対応する。図1の潜伏期間後のグラフの傾きは、ボイドの成長速度を表し、温度に依存する。このときのアレニウスプロットの傾きは、原子空孔の移動エネルギーに一致した。すなわち、ボイドの核生成・成長は、原子空孔拡散に律速した反応であることになる。

次に、系内に、SIA, 原子空孔, 格子間 He が存在する場合を考えたところ、バブル核成長は、He が多いほど潜伏期間が短く、また、成長速度は速くなった。

(2) SiC 中のボイドの核生成・成長

次に、SiC 中のボイド成長の時間発展を調べてみた。温度が高くなるとボイド成長の潜伏時間が短くなった。アレニウスプロットから、ボイドの成長は空孔拡散律速であることがわかった。これは、金属 Fe 中のボイドの場合 (図1) と同じである。

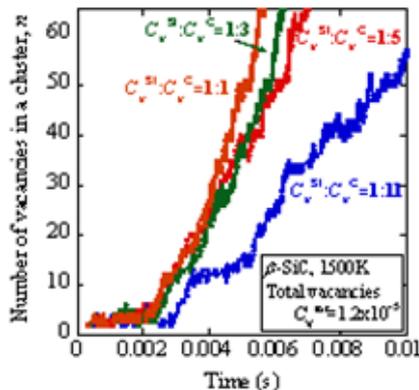


図2 SiC中のボイドの成長

さらに、SiC 中のボイド成長に対するマトリクス中の空孔濃度依存性を調べた。図2は、マトリクス内の Si 空孔と C 空孔の濃度比をそれぞれ、1:1 から 1:11 まで変化させた場合の、ボイドサイズの時間発展を示したものである。ボイドの成長は、マトリクス中の Si・C 空孔濃度が同数ほど成長しやすく、空孔濃度が偏りにしたが成長速度が遅くなる。このとき成長するボイド内部の空孔の組成比は、マトリクス中の空孔濃度比に関係なく、常に 1:1 になった。これは、 β -SiC 中のボイドの成長挙動は、ボイドの熱的安定性を決定づけるボイド内の空孔組成に大きく支配されることを示している。

以上(1)および(2)をまとめると次のようになる。すなわち、二元化合物である SiC のボイドの場合、ボイド内の Si 空孔と C 空孔の比が 1:1 のときが一番安定になる。そのため、極力、空孔組成が 1:1 になるようにボイドは成長する。したがって、成長速度は、Si 空孔と C 空孔が到達する頻度の違いなどに依存して変化する。一方、金属中の He バブルの成長においては、バブル中の空孔と He の組成比に関係なくどんどん成長する。マトリクスに空孔が多いときは空孔拡散律速で、また、マトリクスに He が多いときは He 拡散律速で成長する。

このように(1)および(2)のモデルをそれぞれ構築し、比較することによって、いかに He が空洞型欠陥集合体の形成を助長するかが明らかになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

[1] K. Morishita, Y. Watanabe, A. Kohyama, H.L. Heinisch, F. Gao, “Nucleation and growth of vacancy clusters in β -SiC during irradiation”, Journal of Nuclear Materials, 386-388 (2009) 30-32.

[2] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, “Rate theory of defect accumulation in β -SiC under irradiation”, Journal of Nuclear Materials, 386-388 (2009) 199-202.

[3] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, R.J. Kurtz, “Defect properties in β -SiC under Irradiation”, accepted for publication in Fusion Science and Technology.

[4] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H.L. Heinisch, F. Gao, R.J. Kurtz, “Energetics of defects in β -SiC under irradiation”, accepted for publication in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.

[5] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, R.J. Kurtz, “MD simulations for defect properties in beta-SiC under Irradiation - Energetics of interstitial clusters -”, Conference Proceeding of Fourth International Conference on Multiscale Materials Modeling, October 2008, Florida State University, Tallahassee, FL, USA, pp. 624-627.

[6] Shahram Sharafat, 森下和功, “連載講

座：今，核融合炉の壁が熱い！—数値モデリングでチャレンジ 第6回 VI-1 壁の中は傷まないか I. 放射線の照射によって受ける壁材料のダメージ”，日本原子力学会誌 50 (2008) pp. 724-729.

[7] 森下和功, Shahram Sharafat, “連載講座：今，核融合炉の壁が熱い！—数値モデリングでチャレンジ 第6回 VI-2 壁の中は傷まないか II. 放射線照射によって受ける壁材料のダメージをいかに予測するか”，日本原子力学会誌 50 (2008) pp. 803-808.

[8] 森下和功, “マルチスケールでのプラズマ・壁相互作用の理解の現状 (分担) (担当 5. 2 章) 核融合材料のマルチスケールモデリング”，プラズマ・核融合学会誌 84, (2008), pp. 941-945.

[9] 森下和功, “核融合炉材料の照射損傷モデリング”，金属 77 (2007) pp. 412-417.

[10] Kazunori Morishita, “Nucleation path of helium bubbles in metals during irradiation”, Philosophical Magazine, 87 (2007) pp. 1139-1158.

[学会発表] (計 30 件)

[1] 吉松潤一, 金田保則, 森下和功, 渡辺淑之, 加藤太治, 岩切宏友, “核融合炉用BCC金属における原子間ポテンシャル関数の構築”, 日本原子力学会春の年会, 2009/3/25, 東京工業大学大岡山キャンパス.

[2] 渡辺淑之, 森下和功, 香山晃, Howard L. Heinisch, Fei Gao, “核融合炉用SiC材料における自己格子間原子集合体の形成エネルギー評価”, 日本原子力学会春の年会, 2009/3/25, 東京工業大学大岡山キャンパス.

[3] 森下和功, “材料照射損傷のマルチスケールモデリング”, 京都大学原子炉実験所材料照射効果の解明と照射技術の高度化ワークショップ, 2009/3/10, 京都大学原子炉実験所.

[4] 森下和功, “材料内物質移行のモデル化”, 京都大学—八戸工業大学—環境科学技術研究所連携シンポジウム, 2009/3/4, 青森市男女共同参画プラザ.

[5] K. Morishita, Y. Watanabe, “A Multiscale Modelling Study of Radiation Damage in Fusion Materials”, 4th Workshop on DEMO in the Broader Approach Activities, 2009/2/4, キャンパスプラザ京都.

[6] K. Morishita, “Multiscale Modeling of Fusion Materials Behavior due to Plasma-Wall Interaction”, Plasma Science Symposium 2009 (PSS-2009) / 26th symposium on Plasma Processing (SPP-26), 2009/2/3, 名古屋大学豊田講堂.

[7] 渡辺淑之, 森下和功, 香山 晃, H. L.

Heinisch, F. Gao, “核融合炉用SiC材料の照射下マイクロ構造発達のモデル化”, 第25回プラズマ・核融合学会年会, 2008/12/5, 栃木県総合文化センター.

[8] 森下和功, 渡辺淑之, 吉松潤一, “複雑かつ階層構造性を有する材料の中で起こるマルチスケールな照射損傷過程をいかに予測すべきか?”, 第25回プラズマ・核融合学会年会, 2008/12/5, 栃木県総合文化センター.

[9] K. Morishita, Y. Watanabe, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, “KMC Simulations for Formation Kinetics of Vacancy Clusters in beta-SiC during Irradiation”, Fourth International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM-4), 2008/10/29, Florida State University, USA.

[10] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, R. J. Kurtz, “MD simulations for defect properties in beta-SiC under Irradiation - Energetics of interstitial clusters -”, Fourth International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM-4), 2008/10/29, Florida State University, USA.

[11] K. Morishita, Y. Watanabe, A. Kohyama, H. L. Heinisch, F. Gao, “Atomistic modeling of formation kinetics of vacancy clusters in 3C-SiC during irradiation”, “, 2008/10/16, 北京航空航天大学, 中国.

[12] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H. L. Heinisch, F. Gao, R. J. Kurtz, “Energetics of defects in β -SiC under irradiation”, 2008/10/16, 北京航空航天大学, 中国.

[13] K. Morishita, Y. Watanabe, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, “Nucleation and growth of vacancy clusters in β -SiC during irradiation”, 18th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (TOFE-18)”, 2008/9/30, Stanford Court Hotel, San Francisco, USA.

[14] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H. Heinisch, F. Gao, R. J. Kurtz, “Defect properties in β -SiC under Irradiation”, 18th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (TOFE-18)”, 2008/9/30, Stanford Court Hotel, San Francisco, USA.

[15] 森下和功, 渡辺淑之, 吉松潤一, “複雑かつ階層構造性を有する材料の中で起こるマルチスケールな照射損傷プロセスをいかに予測するか?”, 日本保全学会第5回学術講演会, 2008/7/11, 茨城県水戸市民会館.

[16] 森下和功, 渡辺淑之, 香山晃, “核融合炉SiC材料の照射損傷モデリング (2) 欠陥集合体の核生成・成長”, 第7回核融合エネルギー連合講演会, 2008/6/21, 青森市男女

共同参画プラザ。

[17] 渡辺淑之, 森下和功, 香山晃, H.L. Heinisch, F. Gao, “核融合炉SiC材料の照射損傷モデリング (1) 欠陥エネルギー評価”, 第7回核融合エネルギー連合講演会, 2008/6/21, 青森市男女共同参画プラザ。

[18] 森下和功, “核融合炉用SiC材料の照射下ミクロ組織発達に関する数値解析(2)”, 日本原子力学会 2008年春の年会, 2008年3月26-28日, 大阪大学吹田キャンパス。

[19] 森下和功, “照射下SiC中の空孔集合体の核生成・成長”, 京都大学原子炉実験所「材料照射効果の解明と照射技術の高度化ワークショップ」, 2008年3月17日, 京都大学原子炉実験所。

[20] K. Morishita, “Modeling of the Effect of Irradiation on Mass & Energy Transfer Processes”, 1st TITAN Common-Task Workshop on System Integration Modeling of MFE and IFE, 2008年2月4-6日, 米国カリフォルニア大学ロサンゼルス校 (UCLA)。

[21] K. Morishita, “Comment on Modeling & Simulation for fission-fusion correlation”, 2nd Workshop on DEMO-BA, 2008年1月28-30日, 日本原子力研究開発機構東京。

[22] K. Morishita, “Nucleation and growth of vacancy clusters in β -SiC during irradiation”, 13th International conference on fusion reactor materials (ICFRM-13), 2007年12月10-14日, Nice, France。

[23] 森下和功, “核融合炉用ブランケット用SiC材料の中性子照射損傷におけるミクロ構造発達のモデル計算(1)”, プラズマ・核融合学会第24回年会, 2007年11月30日, 姫路市イーグレひめじ。

[24] 森下和功, “プラズマ・材料相互作用による材料損傷とダスト発生に関する研究の展開 1. 材料損傷の基礎実験, 理論解析”, プラズマ・核融合学会第24回年会シンポジウムIV, 2007年11月28日, 姫路市イーグレひめじ。

[25] 森下和功, “核融合炉材料のヘリウム損傷”, 九大応力研研究集会「核融合炉材料のヘリウム損傷」, 2007年11月3日, 九州大学応用力学研究所。

[26] 森下和功, “材料照射プロセスのマルチスケール解析とHe損傷機構の解明”, 日本原子力学会 2007年秋の大会, 2007年9月27日~29日, 北九州国際会議場。

[27] 森下和功, “核変換生成元素の挙動モデル”, 第2回先進原子力科学技術に関する連携重点研究討論会, 先進材料の重照射場挙動予測と耐照射性に関する研究, 2007年8月21日, 日本原子力研究開発機構原子力科学

研究所。

[28] 森下和功, “照射下材料挙動のモデリング研究”, 第2回先進原子力科学技術に関する連携重点研究討論会, 2007年8月20日, 茨城県那珂郡東海村テクノ交流館リコッティ。

[29] 森下和功, “保全高度化に向けた照射下材料挙動予測技術の開発”, 日本保全学会第4回学術講演会, 2007年7月2日, 福井大。

[30] Kazunori Morishita, “Nucleation and growth of He-bubbles in metals”, Japan-Russia workshop on theory and modeling of radiation damage in materials, 2007年4月23日, 京都大学エネルギー理工学研究所。

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

●森下 和功 (Morishita Kazunori)
京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授
研究者番号: 80282581

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

(4) 研究協力者

●渡辺 淑之
京都大学・エネルギー科学研究科・博士後期課程学生

●吉松 潤一
京都大学・エネルギー科学研究科・修士課程学生

●香山 晃
京都大学・エネルギー理工学研究所・教授